

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 特 許 公 報 (B 2)

(11)特許番号

特許第3010099号
(P3010099)

(45)発行日 平成12年2月14日(2000.2.14)

(24)登録日 平成11年12月3日(1999.12.3)

(51)Int.Cl.

識別記号

F I

B 0 1 D 11/00

B 0 1 D 11/00

請求項の数1(全 7 頁)

(21)出願番号 特願平4-216999

(22)出願日 平成4年8月14日(1992.8.14)

(65)公開番号 特開平6-63308

(43)公開日 平成6年3月8日(1994.3.8)

審査請求日 平成9年6月13日(1997.6.13)

(73)特許権者 000004569

日本たばこ産業株式会社
東京都港区虎ノ門二丁目2番1号

(73)特許権者 000001199

株式会社神戸製鋼所
兵庫県神戸市中央区脇浜町1丁目3番18号

(72)発明者 伊藤 稔二

神奈川県横浜市緑区梅が丘6番地2 日
本たばこ産業株式会社たばこ中央研究所
内

(74)代理人 100067828

弁理士 小谷 悦司 (外3名)

審査官 服部 智

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 超臨界流体抽出装置

1

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】 二酸化炭素を凝縮、冷却および圧縮して超臨界流体化した溶媒を製造する超臨界流体製造手段と、上記超臨界流体化した溶媒によって原料物質中の抽出成分を抽出する抽出手段と、上記溶媒中に抽出された抽出成分を分離回収する分離手段とからなる超臨界流体抽出装置において、上記超臨界流体製造手段には超臨界流体化した溶媒を製造するための凝縮器および圧縮ポンプが備えられ、上記抽出手段には充填された原料物質中の抽出成分が上記超臨界流体化した溶媒によって抽出される抽出器が設けられ、上記分離手段には気化した溶媒とそれ以外とに分離する複数の分離器が直列に配設され、上記抽出器の上流側にはエントレーナとしての水を抽出器に供給する給水装置が設けられ、上記複数の分離器は、上記抽出手段から導出され、かつ、減圧後に加熱

2

された溶媒から抽出成分を分離する第一分離器と、この第一分離器から導出され、かつ、冷却された溶媒から第一分離器で分離回収されなかった抽出成分を除去する第二分離器と、この第二分離器から導出された溶媒の残留成分および水分のいずれか一方または双方を吸着除去する分離器とから構成されていることを特徴とする超臨界流体抽出装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

10 【産業上の利用分野】本発明は、超臨界流体を用いて有用成分を抽出する抽出装置に関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来の液化炭酸ガスを利用した抽出装置については、特公昭54-3940号公報によって公告されたものが知られている。この抽出装置は動植物性物

質を効果的に抽出するためのものであり、液化炭酸ガスを用いたことによってそれまでの有機溶媒による抽出と比べて以下の点で優れている。すなわち、①抽出物に含まれる残存溶媒を除去する精製過程が不要になる（食品関係では残存溶媒は問題になることが多い）。

【0003】②抽出精度が高い。

【0004】③抽出時間が短縮される。

【0005】④抽出物に毒性を付与することがない。

【0006】⑤取り扱い上安全でかつ経済的である。

【0007】上記公報に開示あるものは、抽出溶媒は液化炭酸ガスが用いられているが、被抽出物の拡散係数や溶解度を考慮して、さらに効率的に抽出分離を行うため、超臨界炭酸ガスの利用が考えられ、そのようなものとしては特開昭61-204002号公報によって開示された抽出分離方法を例示することができる。この方法は、被抽出物質から所定の成分を溶解抽出する抽出工程と、この抽出工程で抽出された成分から特定の成分を分離する分離工程と、溶媒を昇圧する昇圧工程と、昇圧した溶媒を単独あるいは被抽出物と一緒に溶媒の臨界点以上の温度まで加熱して超臨界状態の溶媒とする加熱工程とからなる抽出装置を用い、上記加熱工程で得られる超臨界状態の溶媒によって上記抽出工程で抽出するように構成されたものである。この抽出方法では、溶媒中の不純物を除去するためにフィルターが用いられており、実施例では分離器は一基のみが採用されている。溶媒中の微量の残留臭気成分や水分の除去については述べられていない。

【0008】図2は、従来の超臨界流体（二酸化炭素）を利用した一般的な抽出装置および方法を説明するための説明図である。この図に示すように、超臨界流体抽出装置（以下、単に抽出装置1という）は、抽出溶媒である液状の二酸化炭素を貯蔵する二酸化炭素貯槽2と、この二酸化炭素貯槽2から導出された二酸化炭素（溶媒）を冷媒との熱交換によってさらに冷却する第一熱交換器31と、導出された溶媒を圧縮する圧縮ポンプ4と、温水等からなる熱媒体との熱交換によって溶媒を所定の温度に制御する第二熱交換器32と、原料物質Mが充填され底部から供給された溶媒によってこの原料物質Mから抽出成分を抽出する抽出器5と、この抽出器5から導出された溶媒を加熱蒸気等との熱交換で加熱する第三熱交換器33と、溶媒中の抽出成分を分離回収する分離器6と、抽出成分分離後の溶媒を冷媒との熱交換によって冷却する凝縮器7とから構成され、それらが一本の配管によって直列に環状に接続されている。

【0009】なお、圧縮ポンプ4と第二熱交換器32との間には流量計41が設けられており、抽出器5と第三熱交換器33との間には第一調圧弁5aが、分離器6と凝縮器7との間には第二調圧弁6aとそれに続いて溶媒中の不純物を除去するためのフィルタ6bが設けられている。

【0010】このような抽出装置1において、圧縮ポンプ4から導出された溶媒は超臨界状態になり、抽出器5においてバスケット51内に充填された原料物質Mを貫流し、その間に原料物質M内の抽出成分は超臨界状態の溶媒によって効果的に抽出されるのである。

【0011】溶媒からの抽出成分の分離回収は分離器6において行われるが、分離条件としては、抽出器5の出口側にある第三熱交換器33を調節して行われる分離温度と、第一調圧弁5aおよび第二調圧弁6aの弁の開度を調節して行われる分離圧力との二条件が存在し、これらの条件を設定することによって実際の抽出成分の分離回収が行われる。

【0012】

【発明が解決しようとする課題】ところで、従来の上記図2に示すような抽出装置1においては、分離器6は系内に一基のみしか設けられていないため、溶媒から抽出成分を分離するための分離条件（分離温度および圧力）は、一点のみしか設定することができない。

【0013】しかしながら、通常原料物質Mの中には複数種類の抽出成分が含まれており、これら複数種類の成分の分離条件はそれぞれ異なっているのが一般的である。それにも拘らず、従来は分離条件を一点のみしか設定することができないため、分離条件が異なる他の有用な成分については取り逃がしてしまうという不都合があった。

【0014】また、分離器6において分離することができなかった成分は、分離器6の下流側に設けられたフィルタ6bにおいて除去される場合もあるが、それも限度があり、長時間溶媒を循環使用していると、溶媒に不純物が混入し、純度が低下することにより、抽出器5内における抽出効率の低下や抽出物の品質が低下するという問題点も存在した。

【0015】さらに、分離器6が一基だけであると、溶媒中の水分を十分に除去することができず、その結果圧縮ポンプ4の前で二酸化炭素と水との水和物である固体のハイドレイドが生成され、配管が閉塞する原因となるという欠点もあった。

【0016】以上のように、従来の抽出装置においては、循環使用している溶媒の劣化が激しく、その精製処理が充分に行い得ないことに起因する不都合が種々起こっていたのである。

【0017】このような抽出装置1をさらに改良したものとして特開平3-21302号公報によって開示されたものが挙げられる。この公報によって開示された装置は、分離器を並列で複数器設けて圧力および温度条件を変え、溶解度の違いに応じて複数の抽出成分を分離するように構成されている。しかし、この装置の場合は、抽出物の効率的な分離回収が目的であり、抽残成分が製品となる場合の品質および溶媒としての二酸化炭素の劣化については考慮されていないため、継続的に安定して抽

出装置を運転するについては不安が残る。

【0018】本発明は、上記のような問題点を解決するためになされたものであり、超臨界流体抽出において、抽出成分の分離回収を効率的に行うことができ、また製品品質を向上させることができ、さらに配管の詰りによるトラブルをなくして順調に抽出装置を運転することができる超臨界流体抽出装置を提供することを目的としている。

【0019】

【課題を解決するための手段】本発明の請求項1記載の超臨界流体抽出装置は、二酸化炭素を凝縮、冷却および圧縮して超臨界流体化した溶媒を製造する超臨界流体製造手段と、上記超臨界流体化した溶媒によって原料物質中の抽出成分を抽出する抽出手段と、上記溶媒中に抽出された抽出成分を分離回収する分離手段とからなる超臨界流体抽出装置において、上記超臨界流体製造手段には超臨界流体化した溶媒を製造するための凝縮器および圧縮ポンプが備えられ、上記抽出手段には充填された原料物質中の抽出成分が上記超臨界流体化した溶媒によって抽出される抽出器が設けられ、上記分離手段には気化した溶媒とそれ以外とに分離する複数の分離器が直列に配設され、上記抽出器の上流側にはエントレーナとしての水を抽出器に供給する給水装置が設けられ、上記複数の分離器は、上記抽出手段から導出され、かつ、減圧後に加熱された溶媒から抽出成分を分離する第一分離器と、この第一分離器から導出され、かつ、冷却された溶媒から第一分離器で分離回収されなかった抽出成分を除去する第二分離器と、この第二分離器から導出された溶媒の残留成分および水分のいずれか一方または双方を吸着除去する分離器とから構成されていることを特徴とするものである。

【0020】

【作用】上記請求項1記載の超臨界流体抽出装置によれば、抽出手段より導入された溶媒から抽出成分を分離する分離手段には複数の分離器が直列に設けられているため、複数の分離手段によってより確実に抽出成分を分離回収できるとともに、不純物としての水や分離することができなかつた有機成分をも溶媒から分離除去することができ、その結果抽出成分の収率が上昇するとともに、清浄な状態の溶媒が循環使用されることになり、配管の閉塞が防止されるなど操業状態が安定化し、さらに抽出成分の品質が向上する。

【0021】そして、複数の分離器のうち、まず第一分離器において溶媒中の主な抽出成分が分離回収され、つぎの第二分離器において水などと共に第一分離器で分離されなかつた抽出成分が分離回収される。

【0022】また、第二分離器の下流側に設けられた分離機において溶媒中に残留している微量の残留物および水分が除去されるため、溶媒は不純物がほぼ完全に除去された清浄なものになる。

【0023】

【実施例】図1は本発明に係る超臨界流体抽出装置の構成を示す説明図である。この図に示すように、本実施例においては、抽出装置1は、溶媒貯蔵用の貯槽から供給される液状の溶媒を過冷却および圧縮して上記溶媒を超臨界流体に変換する超臨界流体製造手段1aと、この超臨界流体製造手段1aから供給される超臨界流体化した溶媒によって充填された原料物質中の抽出成分を抽出する抽出器が備えられた抽出手段1bと、上記溶媒中に抽出された抽出成分を分離回収する分離器を有する分離手段1cとから基本構成されている。

【0024】そして、本実施例においては、原料物質から抽出成分を抽出するための溶媒として二酸化炭素が用いられている。

【0025】超臨界流体製造手段1aには、分離手段1cから循環供給されたほぼ常温の溶媒としての二酸化炭素を、冷水等の冷媒と熱交換して液化する凝縮器7と、この凝縮器7によって液化された二酸化炭素を一時貯蔵する二酸化炭素貯槽2と、この二酸化炭素貯槽2から導出された液状の二酸化炭素貯槽2を冷媒との熱交換によってさらに低温に過冷却する第一熱交換器31と、この第一熱交換器31の下流側に設けられた圧縮ポンプ4とを備えている。また、圧縮ポンプ4の上流側には流量計41が設けられており、圧縮ポンプ4により供給される二酸化炭素の液量が測定可能にされている。

【0026】この超臨界流体製造手段1aにおいては、溶媒としての二酸化炭素は液状を呈している。そして、二酸化炭素貯槽2から導出された二酸化炭素は、上記第一熱交換器31による冷却後圧縮ポンプ4による圧縮によって、その圧力は臨界値以上に到達した状態になる。

【0027】上記抽出手段1bには、上流側の圧縮ポンプ4から圧送されてきた臨界値近傍の二酸化炭素を加熱して臨界温度および臨界圧力を超えたいわゆる超臨界流体にする第二熱交換器32と、この第二熱交換器32から導出された超臨界流体の供給を受け、充填された原料物質から抽出成分を抽出する抽出器5とが備えられている。

【0028】抽出器5の内部には金属製の網体からなるバスケット51が内装されるようになっており、原料物質はこのバスケット51に入れられ、この原料物質の入ったバスケット51が抽出器5内に装入されることによって、原料物質の抽出器5内への装填が行われる。そして、抽出器5の底部から導入された超臨界状態の二酸化炭素は、バスケット51内の下部から順次上部に向かって原料物質を浸漬してゆき、その間に原料物質内の抽出成分は溶け出して二酸化炭素内に移行する。

【0029】そして、本実施例においては、第二熱交換器32と抽出器5との間を結ぶ配管内に、抽出成分を効率よく抽出するエントレーナ（担体）としての役割を果たす水が給水装置42から供給されるようになってい

る。また、抽出器5の出口側には第一調圧弁5aが設けられている。

【0030】上記分離手段1cは、抽出器5から導出され第一調圧弁5aにより減圧されて液化した一部の二酸化炭素を加熱する第三熱交換器33と、それに続く第一分離器61と、この第一分離器61から導出された二酸化炭素の温度条件を変更するための第四熱交換器34と、第一分離器で分離回収されなかった抽出成分および水を分離する第二分離器62と、この第二分離器62から導出された二酸化炭素より上記第一および第二分離器61、62で分離回収し得なかった残留物質を除去する第三分離器63と、この第三分離器63から導出された二酸化炭素より水分を除去する第四分離器64とから構成されている。この分離手段1cにおいては、溶媒としての二酸化炭素はガス状となって各種の処理が施される。

【0031】上記第三熱交換器33には加熱用の熱交換熱源として加熱蒸気が供給され、この加熱蒸気と、原料物質から抽出物質を抽出し上記抽出器5から導出された低温の二酸化炭素とは熱交換され、二酸化炭素は所定温度に加熱されて完全にガス化して第一分離器61に供給される。

【0032】上記第一分離器61は、分離手段1c内でメインとなる分離器であり、ここでガス状になった二酸化炭素と、液状の抽出成分とが分離される。そして、この分離を良好に行うために、第一分離器61内の圧力は40kq/cm²～74kq/cm²、好ましくは50kq/cm²～70kq/cm²に、また温度は30℃～80℃に制御される。そして、上記の範囲内で実験によって求められた各抽出成分に対する最適な温度、圧力が実際の操業時に採用される。

【0033】上記のような圧力および温度条件が採用されるのは以下の理由による。すなわち、一般的に気体（本実施例の場合はガス状の二酸化炭素）の抽出成分に対する溶解度は、気体の圧力が低いほど小さいため、圧力を低くすればするほど抽出成分から二酸化炭素がより多く抜け出し好都合である。しかし、圧力が低くなればそれに伴って二酸化炭素の飽和温度も低くなるため、より低温にしなければ循環して使用される二酸化炭素を二酸化炭素貯槽2において液状で貯溜することができなくなる。あえてより低温にすれば、二酸化炭素と水との水和物であるハイドレイドが配管内に多く生成して円滑な操業を妨害する。これらの不都合を回避するために、上記のような圧力および温度条件が採用されているのである。

【0034】なお、圧力値については、以下の第二分離器62、第三分離器63および第四分離器64においても上記と同じであり、さらに循環使用される二酸化炭素が貯溜される二酸化炭素貯槽2内のガス圧力も同様である。

【0035】上記第二分離器62は、第一分離器61で分離することができなかった抽出成分および水を分離するための分離器であり、分離された水の中には抽出成分も含まれているから、この水を別途精製することによって抽出成分をさらに回収することができる。

【0036】この第二分離器62の温度条件は、20℃～45℃、好ましくは20℃～35℃とされている。この温度は、第一分離器61から導出された二酸化炭素を冷水で熱交換を行って冷却する第四熱交換器34をコントロールすることによって実現する。そして、上記のような温度条件が設定された理由は、第一分離器よりも低温とすることにより、第一分離器で分離し得なかった抽出成分、特に親水性物質および水を分離回収するため、並びに上記圧力条件において、二酸化炭素が液化しないようにその飽和温度よりも約5℃高めに第二分離器62内の温度を設定したいがためである。

【0037】この温度条件は、つぎの第三分離器63および第四分離器64においても同様にしてしている。なお、これら分離器63、64の操業条件に応じて二酸化炭素の温度を設定するようにしてもよい。

【0038】上記第三分離器63は、上記第一および第二分離器61、62で分離回収し得なかった残留物質を除去するためのものである。この残留物質の代表的なものとしては、ガス状の二酸化炭素に混じった抽出成分の蒸気がある。そのほか不純物としての有機成分を挙げることできる。この第三分離器63は、いわゆる活性炭吸着塔であって、第三分離器63内に充填された粒状の活性炭によって上記残留物質が吸着除去される。残留物を吸着除去するための吸着剤としては、活性炭の他に活性アルミナ、ゼオライトなどを用いることもできるが、本実施例の抽出装置のように吸着対象物がほとんど有機成分である場合は活性炭が最も適している。

【0039】上記第四分離器64は、第三分離器より導出された二酸化炭素から水分を除去するためのものである。この第四分離器64には活性アルミナが充填されている。活性アルミナのほかに、水分除去のために活性炭、シリカゲルあるいは合成ゼオライトなども充填剤として適用することができるが、活性アルミナが最も好適である。

【0040】第四分離器64によって水分が除かれ、乾燥状態になったガス状の二酸化炭素は、超臨界流体製造手段1aの凝縮器7に供給されて循環使用される。

【0041】本実施例の超臨界流体抽出装置は以上のように構成されているので、まず超臨界流体製造手段1aにおいて、前工程の分離手段1cから供給されたガス状の二酸化炭素は、凝縮器7で熱交換によって冷却され、液化して一旦二酸化炭素貯槽2に貯溜される。そして、二酸化炭素貯槽2内の液状二酸化炭素は圧縮ポンプ4の稼働に応じて適宜その下部から抜き出され、第一熱交換器31で冷媒との熱交換が行われてさらに冷却され、圧

縮ポンプ4で加圧されてつぎの抽出手段1bに導出される。

【0042】抽出手段1bに供給された液状の二酸化炭素は、まず第二熱交換器32によって熱媒との熱交換により加熱されて超臨界流体となり、別途給水装置42から供給されるエントレーナとしての水と合流し、抽出器5の底部に導入される。抽出器5のバスケット51内には予め抽出用の原料物質が充填されているため、超臨界状態の二酸化炭素はバスケット51内の原料物質を下部から上部に貫流するように浸漬するため、原料物質内の抽出成分は抽出されて超臨界状態の二酸化炭素内に移行する。この抽出成分を抽出された原料物質が製品となることもある。

【0043】そして、抽出成分ではば飽和した二酸化炭素は抽出器5の頂部から第一調圧弁5aを介して分離手段1c内の第三熱交換器33に供給され、熱交換によって加熱されて30℃～80℃になる。この場合、第一調圧弁5aが適切に制御されることによって、二酸化炭素は圧力は50kPa/cm²～74kPa/cm²のガス状になって第一分離器61に供給される。この第一分離器61において、ガス状の二酸化炭素から抽出成分は分離して第一分離器61の底部に溜り、この貯溜した抽出成分は適宜抜き出されて製品とされる場合もある。

【0044】一方、第一分離器61の上部から導出されたガス状の二酸化炭素は、第四熱交換器34に導出され、ここで冷水との熱交換によって20℃～45℃にまで冷却され、第二分離器62に供給される。この第二分離器62においては、第一分離器で分離回収されなかった抽出成分および水とが取り除かれ、さらに上記第一分離器61で分離し得なかった抽出成分も分離回収される。

【0045】そして、第二分離器62を導出された二酸化炭素は、第三分離器63で残留物が吸着除去され、第四分離器64で水分が取り除かれて乾燥状態となり、再度超臨界流体製造手段1aの凝縮器7に供給されて循環使用される。

【0046】以上のように、本実施例の抽出装置1は、その分離手段1cにおいて分離器6として、第一分離器61、第二分離器62、第三分離器63および第四分離器64の合計四基の分離器を直列的に配置し、循環使用される溶媒としての二酸化炭素から順次抽出成分、水等、残留物および残留水分を取り去るようにされているため、製品収率は上昇し、製品品質は向上するとともに、溶媒としての二酸化炭素は常に清浄に保たれるため、配管閉塞のトラブルは減少し、円滑な抽出装置1の操業が実現する。

【0047】なお、上記実施例においては、分離器6は四基とされているが、本発明は四基に限定されるものではなく、二基でもよいしまた五基以上でもよい。

【0048】また、上記実施例においては、製品を取り

出すメインの分離器として第一分離器61を設けているが、第一分離器61の上流側にさらにもう一基の分離器を設け、第一分離器61との間に調圧弁を設け、この調圧弁と第一調圧弁5aとを操作することによってこの分離器内の圧力を74kPa/cm²以上に制御するようにすれば、抽出成分が複数種類存在するような場合にも適用することができ好都合である。

【0049】

【発明の効果】以上説明したように、本発明の超臨界流体抽出装置は、貯槽から供給される液状の溶媒を加熱および圧縮して上記溶媒を超臨界流体に変換する超臨界流体製造手段と、この超臨界流体製造手段から供給される超臨界流体化した溶媒によって原料物質中の抽出成分を抽出する抽出器が備えられた抽出手段と、上記溶媒中に抽出された抽出成分を分離回収する分離器を有する分離手段とからなる超臨界流体抽出装置において、抽出手段より導入された溶媒から抽出成分を分離する分離手段には複数の分離器が設けられているため、複数の分離手段によってより確実に抽出成分を分離回収することができるとともに、不純物としての水や分離することができなかった有機成分をも溶媒から分離除去することができ、その結果清浄な状態の溶媒が循環使用されることになり、配管の閉塞が防止されるなど操業状態が安定化する。

【0050】また、上記複数の分離器として、抽出手段から導出された溶媒を減圧後に加熱してこの溶媒から抽出成分を分離する第一分離器と、この第一分離器から導出された溶媒を冷却することにより第一分離器で分離回収されなかった抽出成分を除去する第二分離器と、この第二分離器から導出された溶媒の残留成分および水分を除去する分離器とを設けたため、まず第一分離器において溶媒中の主な抽出成分が分離回収され、つぎの第二分離器において水などと共に第一分離器で分離されなかった抽出成分が分離回収され、これによって溶媒を不純物がほぼ完全に除去された清浄なものにすることができるとともに、第二分離器では、第一分離器よりも低温とすることにより水が分離され、それに伴い親水性物質がより効率的に分離される。

【0051】本発明は、以上のように抽出装置の分離手段に複数の分離器を設けて複数段で溶媒中に抽出された抽出成分を分離回収するとともに、溶媒中の不純物を取り去るものであるため、循環使用される溶媒は常に清浄化され、抽出装置を円滑に運転することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の超臨界流体抽出装置の一例を示す説明図である。

【図2】従来の超臨界流体抽出装置の一例を示す説明図である。

【符号の説明】

1 抽出装置

11

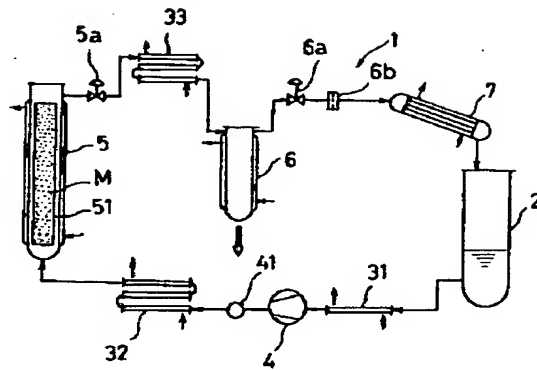
12

- 1 a 超臨界流体製造手段
 1 b 抽出手段
 1 c 分離手段
 2 二酸化炭素貯槽
 3 1 第一熱交換器
 3 2 第二熱交換器
 3 3 第三熱交換器
 3 4 第四熱交換器
 4 圧縮ポンプ

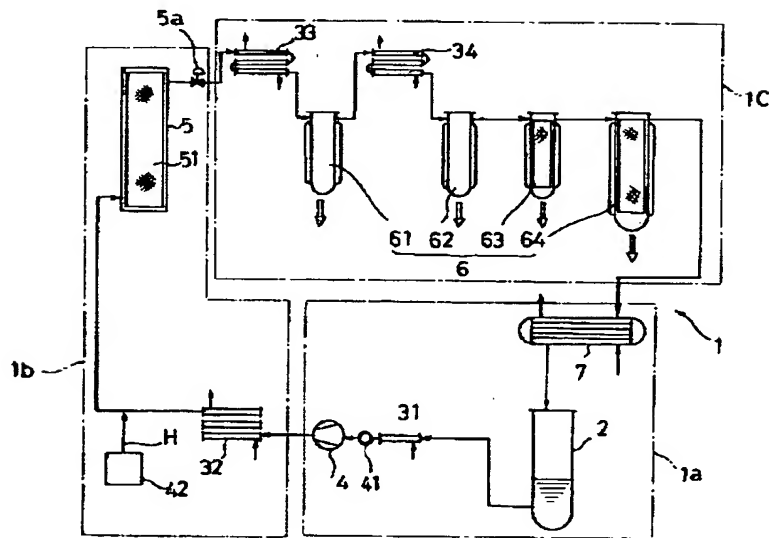
- * 5 抽出器
 5 1 バスケット
 6 分離器
 6 1 第一分離器
 6 2 第二分離器
 6 3 第三分離器
 6 4 第四分離器
 7 凝縮器

*

【図2】



【図1】



フロントページの続き

(72)発明者 伊傳 敏夫
神奈川県横浜市緑区梅が丘6番地2 日
本たばこ産業株式会社たばこ中央研究所
内

(72)発明者 亀本 健
神奈川県平塚市黒部丘1の77 日本たば
こ産業株式会社平塚工場内

(72)発明者 加藤 修
神戸市中央区脇浜町1丁目3番18号 株
式会社神戸製鋼所 神戸本社内

(72)発明者 山形 昌弘
神戸市中央区脇浜町1丁目3番18号 株
式会社神戸製鋼所 神戸本社内

(56)参考文献 特開 昭61-204002 (J P, A)
特開 平2-139003 (J P, A)
特開 平4-149148 (J P, A)

(58)調査した分野(Int.Cl.⁷, D B名)
B01D 11/00